

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

24.02.2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 4 年 2 月 2 6 日
Date of Application:

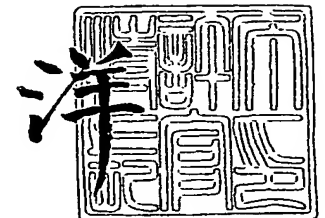
出 願 番 号 特 願 2 0 0 4 - 0 5 1 2 3 4
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 4 - 0 5 1 2 3 4]

出 願 人 住 友 電 気 工 業 株 式 会 社
Applicant(s):

2 0 0 5 年 3 月 3 1 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



出証番号 出証特 2 0 0 5 - 3 0 2 8 4 7 8

【書類名】 特許願
【整理番号】 1040254
【提出日】 平成16年 2月26日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 H01F 1/33
H01F 1/22

【発明者】
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内
【氏名】 前田 徹

【発明者】
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内
【氏名】 五十嵐 直人

【発明者】
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内
【氏名】 豊田 晴久

【発明者】
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内
【氏名】 廣瀬 和弘

【特許出願人】
【識別番号】 000002130
【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号
【氏名又は名称】 住友電気工業株式会社

【代理人】
【識別番号】 100064746
【弁理士】
【氏名又は名称】 深見 久郎

【選任した代理人】
【識別番号】 100085132
【弁理士】
【氏名又は名称】 森田 俊雄

【選任した代理人】
【識別番号】 100083703
【弁理士】
【氏名又は名称】 仲村 義平

【選任した代理人】
【識別番号】 100096781
【弁理士】
【氏名又は名称】 堀井 豊

【選任した代理人】
【識別番号】 100098316
【弁理士】
【氏名又は名称】 野田 久登

【選任した代理人】
【識別番号】 100109162
【弁理士】
【氏名又は名称】 酒井 將行



【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008693

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 特許請求の範囲 1

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9908053

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

複数の複合磁性粒子を備え、

前記複数の複合磁性粒子の各々は、鉄を含む金属磁性粒子と、前記金属磁性粒子の表面を取り囲み、非鉄金属を含む下層被膜と、前記下層被膜の表面を取り囲み、酸素および炭素の少なくともいずれか一方を含む絶縁性の上層被膜とを有し、

前記非鉄金属の、前記上層被膜に含まれる酸素および炭素の少なくともいずれか一方に対する親和力は、鉄の前記親和力よりも大きい、軟磁性材料。

【請求項 2】

複数の複合磁性粒子を備え、

前記複数の複合磁性粒子の各々は、鉄を含む金属磁性粒子と、前記金属磁性粒子の表面を取り囲み、非鉄金属を含む下層被膜と、前記下層被膜の表面を取り囲み、酸素および炭素の少なくともいずれか一方を含む絶縁性の上層被膜とを有し、

前記非鉄金属における、前記上層被膜に含まれる酸素および炭素の少なくともいずれか一方の拡散係数は、鉄における前記拡散係数よりも小さい、軟磁性材料。

【請求項 3】

前記非鉄金属は、アルミニウム、クロム、シリコン、チタン、バナジウムおよびニッケルからなる群より選ばれた少なくとも一種を含む、請求項 1 または 2 に記載の軟磁性材料。

【請求項 4】

前記下層被膜の平均厚みは、50 nm 以上 1 μ m 以下である、請求項 1 から 3 のいずれか 1 項に記載の軟磁性材料。

【請求項 5】

前記上層被膜は、リン化合物、シリコン化合物、アルミニウム化合物、ジルコニウム化合物およびチタン化合物からなる群より選ばれた少なくとも一種を含む、請求項 1 から 4 のいずれか 1 項に記載の軟磁性材料。

【請求項 6】

前記上層被膜の平均厚みは、10 nm 以上 1 μ m 以下である、請求項 1 から 5 のいずれか 1 項に記載の軟磁性材料。

【請求項 7】

請求項 1 から 6 のいずれか 1 項に記載の軟磁性材料を用いて作製された、圧粉磁心。

【請求項 8】

前記複数の複合磁性粒子間に介在して前記複数の複合磁性粒子を互いに接合し、ポリエチレン樹脂、シリコン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、アクリル樹脂およびポリテトラフルオロエチレンからなる群より選ばれた少なくとも一種を含む有機物をさらに備える、請求項 7 に記載の圧粉磁心。

【請求項 9】

請求項 7 または 8 に記載の圧粉磁心の製造方法であって、

前記複数の複合磁性粒子を加圧成形することによって成形体を形成する工程と、

前記成形体を 500 $^{\circ}$ C 以上の温度で熱処理をする工程とを備える、圧粉磁心の製造方法。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 軟磁性材料ならびに圧粉磁心およびその製造方法

【技術分野】

【0001】

この発明は、一般的には、軟磁性材料ならびに圧粉磁心およびその製造方法に関し、より特定のには、絶縁性の被膜によって覆われた金属磁性粒子を備える軟磁性材料ならびに圧粉磁心およびその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、モーターコアやトランスコアなどの電気電子部品において高密度化および小型化が図られており、より精密な制御を小電力で行えることが求められている。このため、これらの電気電子部品の作製に使用される軟磁性材料であって、特に中高周波領域において優れた磁気的特性を有する軟磁性材料の開発が進められている。

【0003】

このような軟磁性材料に関して、たとえば、特開 2002-246219 号公報には、高い温度環境下の使用に際しても磁気特性が維持できることを目的とした圧粉磁心およびその製造方法が開示されている（特許文献 1）。特許文献 1 に開示された圧粉磁心の製造方法によれば、まず、リン酸被膜処理アトマイズ鉄粉に所定量のポリフェニレンサルファイド（PPS 樹脂）を混合し、これを圧縮成形する。得られた成形体を空気中において温度 320℃ で 1 時間加熱し、さらに温度 240℃ で 1 時間加熱する。その後、冷却することによって圧粉磁心を作製する。

【特許文献 1】 特開 2002-246219 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

このように作製された圧粉磁心の内部に、多数の歪み（転位、欠陥）が存在する場合、これらの歪みは磁壁移動（磁束変化）の妨げとなるため、圧粉磁心の透磁率を低下させる原因となる。特許文献 1 に開示された圧粉磁心では、二度に渡って成形体を実施される熱処理によっても内部に存在する歪みが十分に解消されていない。このため、得られた圧粉磁心の実効透磁率は、周波数や PPS 樹脂の含有量によっても変化するが、常に 400 以下の低い値にとどまっている。

【0005】

また、圧粉磁心の内部に存在する歪みを十分に低減させるため、成形体を実施する熱処理の温度を高くすることが考えられる。しかし、アトマイズ鉄粉を覆うリン酸化合物は、耐熱性に劣っているため、温度を高く設定すると熱処理時に劣化する。このため、リン酸被膜処理アトマイズ鉄粉の粒子間渦電流損が増大し、圧粉磁心の透磁率が低下するおそれが生じる。

【0006】

そこでこの発明の目的は、上記の課題を解決することであり、所望の磁気的特性が得られる軟磁性材料ならびに圧粉磁心およびその製造方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0007】

この発明のひとつの局面に従った軟磁性材料は、複数の複合磁性粒子を備える。複数の複合磁性粒子の各々は、鉄を含む金属磁性粒子と、金属磁性粒子の表面を取り囲み、非鉄金属を含む下層被膜と、下層被膜の表面を取り囲み、酸素および炭素の少なくともいずれか一方を含む絶縁性の上層被膜とを有する。非鉄金属の、上層被膜に含まれる酸素および炭素の少なくともいずれか一方に対する親和力は、鉄のその親和力よりも大きい。

【0008】

このように構成された軟磁性材料によれば、下層被膜を金属磁性粒子と絶縁性の上層被膜との間に設けることによって、軟磁性材料の熱処理時に、上層被膜に含まれる酸素また

は炭素が金属磁性粒子に拡散することを防止できる。つまり、下層被膜は、金属磁性粒子に含まれる鉄と比較して、酸素または炭素に対する親和力が大きい非鉄金属を含む。このため、酸素および炭素が積極的に非鉄金属と反応することによって下層被膜に捕獲された状態となり、酸素および炭素が金属磁性粒子内に浸入することを防止できる（ゲッター効果）。これにより、金属磁性粒子中の不純物濃度の増加を抑え、金属磁性粒子の磁気的特性が劣化することを防止できる。また同時に、金属磁性粒子への酸素および炭素の拡散を防止することによって、上層被膜における酸素および炭素の含有量が低下することを抑制できる。これにより、上層被膜の分解または変質が進行して上層被膜の絶縁性が劣化することを防止できる。

【0009】

この発明の別の局面に従った軟磁性材料は、複数の複合磁性粒子を備える。複数の複合磁性粒子の各々は、鉄を含む金属磁性粒子と、金属磁性粒子の表面を取り囲み、非鉄金属を含む下層被膜と、下層被膜の表面を取り囲み、酸素および炭素の少なくともいずれか一方を含む絶縁性の上層被膜とを有する。非鉄金属における、上層被膜に含まれる酸素および炭素の少なくともいずれか一方の拡散係数は、鉄におけるその拡散係数よりも小さい。

【0010】

このように構成された軟磁性材料によれば、下層被膜を金属磁性粒子と絶縁性の上層被膜との間に設けることによって、軟磁性材料の熱処理時に、上層被膜に含まれる酸素または炭素が金属磁性粒子に拡散することを抑制できる。つまり、下層被膜は、金属磁性粒子に含まれる鉄と比較して、酸素または炭素の拡散係数が小さい非鉄金属を含む。このため、上層被膜から金属磁性粒子に向かう酸素および炭素の拡散速度が下層被膜において遅くなり、酸素および炭素が金属磁性粒子内に浸入することを抑制できる（バリアー効果）。これにより、金属磁性粒子中の不純物濃度の増加を抑え、金属磁性粒子の磁気的特性が劣化することを防止できる。また同時に、金属磁性粒子への酸素および炭素の拡散を防止することによって、上層被膜における酸素および炭素の含有量が低下することを抑制できる。これにより、上層被膜の分解または変質が進行して、上層被膜の絶縁性が劣化することを防止できる。

【0011】

以上説明した理由から、これらの発明によれば、金属磁性粒子および絶縁性の上層皮膜の劣化を懸念することなく、軟磁性材料に高温の熱処理を実施することができる。

【0012】

また好ましくは、非鉄金属は、アルミニウム（Al）、クロム（Cr）、シリコン（Si）、チタン（Ti）、バナジウム（V）およびニッケル（Ni）からなる群より選ばれた少なくとも一種を含む。このように構成された軟磁性材料によれば、これらの材料は、鉄と比較して、酸素または炭素に対する親和力が大きい、酸素または炭素の拡散係数が小さい。このため、下層被膜によるゲッター効果およびバリアー効果の少なくともいずれか一方によって、上述の効果を達成することができる。

【0013】

加えて、これらの材料と酸素または炭素とが反応することによって、下層被膜の電気抵抗が増大する場合がある。この場合、上層被膜とともに下層被膜を絶縁被膜として機能させることができる。また、これらの材料は、金属磁性粒子に含まれる鉄に固溶しても、金属磁性粒子の軟磁性を悪化させない。このため、軟磁性材料の磁気的特性が低減することを防止できる。

【0014】

また好ましくは、下層被膜の平均厚みは、50 nm以上1 μ m以下である。このように構成された軟磁性材料によれば、下層被膜の平均厚みが50 nm以上であるため、下層被膜によるゲッター効果またはバリアー効果を確実に得ることができる。また、下層被膜の平均厚みが1 μ m以下であるため、本発明による軟磁性材料を用いて成形体を作製した場合に、金属磁性粒子間の距離が大きくなりすぎることがない。これにより、金属磁性粒子間に反磁界が発生する（金属磁性粒子に磁極が生じてエネルギーの損失が発生する）

ことを防止し、反磁界の発生に起因したヒステリシス損の増大を抑制できる。また、軟磁性材料に占める非磁性層の体積比率を抑え、飽和磁束密度が低下することを抑制できる。

【0015】

また好ましくは、上層被膜は、リン化合物、シリコン化合物、アルミニウム化合物、ジルコニウム化合物およびチタン化合物からなる群より選ばれた少なくとも一種を含む。このように構成された軟磁性材料によれば、これらの材料は絶縁性に優れているため、金属磁性粒子間に流れる渦電流をより効果的に抑制することができる。

【0016】

また好ましくは、上層被膜の平均厚みは、10 nm以上1 μ m以下である。このように構成された軟磁性材料によれば、上層被膜の平均厚みが10 nm以上であるため、被膜中を流れるトンネル電流を抑制し、このトンネル電流に起因する渦電流損の増大を抑えることができる。また、上層被膜の平均厚みが1 μ m以下であるため、本発明による軟磁性材料を用いて成形体を作製した場合に、金属磁性粒子間の距離が大きくなりすぎるということがない。これにより、金属磁性粒子間に反磁界が発生することを防止し、反磁界の発生に起因したヒステリシス損の増大を抑制できる。また、軟磁性材料に占める非磁性層の体積比率を抑え、飽和磁束密度が低下することを抑制できる。

【0017】

この発明に従った圧粉磁心は、上述のいずれかに記載の軟磁性材料を用いて作製された圧粉磁心である。このように構成された圧粉磁心によれば、高温の熱処理によって、圧粉磁心の内部に存在する歪みを十分に低減させ、ヒステリシス損の小さい磁気的特性を得ることができる。また同時に、高温で熱処理されたにもかかわらず下層被膜に働きによって保護された絶縁性の上層被膜によって、渦電流損の小さい磁気的特性を得ることができる。

【0018】

また好ましくは、圧粉磁心は、複数の複合磁性粒子間に介在して、複数の複合磁性粒子を互いに接合し、ポリエチレン樹脂、シリコン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、アクリル樹脂およびポリテトラフルオロエチレンからなる群より選ばれた少なくとも一種を含む有機物をさらに備える。このように構成された圧粉磁心によれば、これらの有機物は、複数の複合磁性粒子間を強固に接合するとともに、軟磁性材料の加圧成形時に潤滑剤として機能し、複合磁性粒子同士が擦れ合って上層被膜が破壊されることを防止する。このため、圧粉磁心の強度を向上させ、さらに、渦電流損を低減させることができる。また、金属磁性粒子は下層被膜によって覆われているため、これらの有機物に含まれる酸素または炭素が金属磁性粒子内に拡散することも防止できる。

【0019】

この発明に従った圧粉磁心の製造方法は、複数の複合磁性粒子を加圧成形することによって成形体を形成する工程と、成形体を500℃以上の温度で熱処理をする工程とを備える。このように構成された圧粉磁心の製造方法によれば、成形体を実施する熱処理の温度を500℃以上に設定することによって、圧粉磁心の内部に存在する歪みを十分に低減させることができる。また、このような高温に成形体を晒した場合であっても、下層被膜の働きによって金属磁性粒子および絶縁性の上層被膜が劣化することを防止できる。

【発明の効果】

【0020】

以上説明したように、この発明に従えば、所望の磁気的特性が得られる軟磁性材料ならびに圧粉磁心およびその製造方法を提供することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0021】

この発明の実施の形態について、図面を参照して説明する。

【0022】

図1は、この発明の実施の形態における軟磁性材料を用いて作製された圧粉磁心の断面

を示す模式図である。図1を参照して、軟磁性材料は、金属磁性粒子10と、金属磁性粒子10の表面を取り囲む下層被膜20と、下層被膜20の表面を取り囲む上層被膜30とからなる複数の複合磁性粒子40を備える。複数の複合磁性粒子40の間には、ポリエチレン樹脂、シリコン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、アクリル樹脂およびポリテトラフルオロエチレン（テフロン（R））などから形成された有機物50が介在している。圧粉磁心は、複数の複合磁性粒子40の各々が、複合磁性粒子40が有する凹凸の噛み合わせによって互いに接合されたり、有機物50によって互いに接合されることによって形成されている。

【0023】

なお、本発明において有機物50は必ずしも設けられている必要はなく、複数の複合磁性粒子40の各々が、複合磁性粒子40が有する凹凸の噛み合わせによってのみ接合されていても良い。

【0024】

金属磁性粒子10は、鉄（Fe）を含み、たとえば、鉄（Fe）、鉄（Fe）-シリコン（Si）系合金、鉄（Fe）-窒素（N）系合金、鉄（Fe）-ニッケル（Ni）系合金、鉄（Fe）-炭素（C）系合金、鉄（Fe）-ホウ素（B）系合金、鉄（Fe）-コバルト（Co）系合金、鉄（Fe）-リン（P）系合金、鉄（Fe）-ニッケル（Ni）-コバルト（Co）系合金および鉄（Fe）-アルミニウム（Al）-シリコン（Si）系合金などから形成されている。金属磁性粒子10は、鉄単体であっても鉄系の合金であってもよい。

【0025】

金属磁性粒子10の平均粒径は、 $5\mu\text{m}$ 以上 $300\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。金属磁性粒子10の平均粒径を $5\mu\text{m}$ 以上にした場合、金属磁性粒子10が酸化されにくい。ため、圧粉磁心の磁気的特性を向上させることができる。また、金属磁性粒子10の平均粒径を $300\mu\text{m}$ 以下にした場合、加圧成形時において粉末の圧縮性が低下することがない。これにより、加圧成形によって得られる成形体の密度を大きくすることができる。

【0026】

なお、ここで言う平均粒径とは、ふるい法によって測定した粒径のヒストグラム中、粒径の小さいほうからの質量の和が総質量の50%に達する粒子の粒径、つまり50%粒径Dをいう。

【0027】

下層被膜20は、アルミニウム、クロム、シリコン、チタン、バナジウムまたはニッケルなどの非鉄金属を含んで形成されている。下層被膜20を形成する非鉄金属の炭素および酸素に対する親和力を、鉄の炭素および酸素に対する親和力とともに表1に示す。表1中には、これらの金属と炭素および酸素との反応によってそれぞれ生成される一次生成化合物と、その反応時に発生する生成熱とが示されており、生成熱の絶対値が大きいほど、炭素または酸素に対する親和力が大きいと判断される。

【0028】

【表 1】

Metal	炭素に対する親和力		酸素に対する親和力	
	一次生成化合物	生成熱 (@25°C) (kJ/mol)	一次生成化合物	生成熱 (@25°C) (kJ/mol)
Al	Al_4C_3	-3675	Al_2O_3	-1677
Cr	Cr_3C_2	-2721	Cr_2O_3	-1129
Ni	なし	-	NiO	-241
Si	SiC	-1240	SiO_2	-910
Ti	TiC	-5900	TiO	-805
V	VC	-1245	V_2O_3	-1219
Fe	Fe_3C	-1109	FeO	-264

【0029】

表1を参照して、アルミニウム、クロム、シリコン、チタンおよびバナジウムの炭素および酸素に対する親和力は、鉄の炭素および酸素に対する親和力よりも大きいことが分かる。また、ニッケルに関しても、ニッケルの炭化物は存在しないが、酸素に対する親和力は、鉄の酸素に対する親和力と同程度である。

【0030】

次に、下層被膜20を形成する非鉄金属における炭素および酸素の拡散係数を、鉄における炭素および酸素の拡散係数とともに表2に示す。なお、表2中に示す拡散振動係数 D_0 および拡散活性化エネルギー Q は、500℃から900℃ほどの温度における値であり、拡散係数 D および拡散距離 L は、温度600℃における値である。

【0031】

【表 2】

Metal	C 拡散係数 in Metal				O 拡散係数 in Metal			
	Do (m^2/s)	Q (kJ/mol)	D(@600°C) (m^2/s)	L(@600°C) (μm)	Do (m^2/s)	Q (kJ/mol)	D(@600°C) (m^2/s)	L(@600°C) (μm)
Al	-	-	-	-	-	-	-	-
Cr	9.00×10^{-7}	111	2.06×10^{-13}	7.7	-	-	-	-
Ni	1.20×10^{-5}	142	3.83×10^{-14}	3.3	5.80×10^{-4}	292	1.97×10^{-21}	0.00075
Si	1.90×10^{-4}	13	3.17×10^{-5}	9.5×10^4	2.10×10^{-5}	241	8.01×10^{-20}	0.0048
Ti	7.90×10^{-8}	128	1.74×10^{-15}	0.71	5.10×10^{-7}	140	2.15×10^{-15}	0.78
V	4.90×10^{-7}	114	7.41×10^{-14}	4.6	1.10×10^{-5}	121	6.34×10^{-13}	13
Fe	1.24×10^{-5}	96	2.24×10^{-11}	80	1.00×10^{-5}	111	2.29×10^{-12}	26

Do: 拡散振動数項

Q: 拡散活性化エネルギー

D(拡散係数): $D_0 \times \exp(-Q/RT)$: R ガス定数=8.315[J/mol/K]、T 温度[K]

L: 拡散距離(拡散時間=1 時間、拡散源と被拡散体の接合面=球面を仮定)

【0032】

表2を参照して、クロム、ニッケル、チタンおよびバナジウムにおける炭素の拡散係数は、鉄における炭素の拡散係数よりも小さいことが分かる。また、ニッケル、シリコン、チタンおよびバナジウムにおける酸素の拡散係数は、鉄における酸素の拡散係数よりも小さいことが分かる。つまり、下層被膜20は、鉄と比較して、炭素または酸素に対する親和性が高い非鉄金属、炭素または酸素の拡散係数が小さい非鉄金属、または炭素または酸素に対する親和性が高く、かつ、炭素または酸素の拡散係数が小さい非鉄金属から形成されている。

【0033】

下層被膜 20 の平均厚みは、50 nm 以上 1 μ m 以下であることが好ましい。なお、ここで言う平均厚みとは、組成分析 (TEM-EDX: transmission electron microscope energy dispersive X-ray spectroscopy) によって得られる膜組成と、誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS: inductively coupled plasma-mass spectrometry) によって得られる元素量とを鑑みて相当厚さを導出し、さらに、TEM 写真により直接、被膜を観察し、先に導出された相当厚さのオーダーを確認することで決定されるものを言う。

【0034】

上層被膜 30 は、酸素または炭素を含み、少なくとも電気的絶縁性を有する材料から形成されており、たとえば、リン化合物、シリコン化合物、アルミニウム化合物、ジルコニウム化合物およびチタン化合物などから形成されている。このような材料としては、リンと鉄とを含むリン酸鉄の他、リン酸マンガン、リン酸亜鉛、リン酸カルシウム、リン酸アルミニウム、酸化シリコン、酸化チタン、酸化アルミニウムまたは酸化ジルコニウムなどを挙げることができる。上層被膜 30 の平均厚みは、10 nm 以上 1 μ m 以下であることが好ましい。なお、ここで言う平均厚みについても、上述の方法と同様の方法によって決定される。

【0035】

上層被膜 30 は、複数の金属磁性粒子 10 間の絶縁層として機能する。金属磁性粒子 10 を上層被膜 30 で覆うことによって、圧粉磁心の電気抵抗率 ρ を大きくすることができる。これにより、複数の金属磁性粒子 10 間に渦電流が流れるのを抑制して、渦電流損に起因する圧粉磁心の鉄損を低減させることができる。

【0036】

この発明の実施の形態における軟磁性材料は、複数の複合磁性粒子 40 を備える。複数の複合磁性粒子 40 の各々は、鉄を含む金属磁性粒子 10 と、金属磁性粒子 10 の表面を取り囲み、非鉄金属を含む下層被膜 20 と、下層被膜 20 の表面を取り囲み、酸素および炭素の少なくともいずれか一方を含む絶縁性の上層被膜 30 とを有する。非鉄金属の、上層被膜 30 に含まれる酸素および炭素の少なくともいずれか一方に対する親和力は、鉄のその親和力よりも大きい。非鉄金属における、上層被膜 30 に含まれる酸素および炭素の少なくともいずれか一方の拡散係数は、鉄におけるその拡散係数よりも小さい。

【0037】

続いて、図 1 中に示す圧粉磁心を製造する方法について説明を行なう。まず、金属磁性粒子 10 の表面に下層被膜 20 を形成し、さらに下層被膜 20 の表面に上層被膜 30 を形成することによって、複合磁性粒子 40 を作製する。次に、その複合磁性粒子 40 と有機物 50 とを金型に入れ、たとえば、700 MPa から 1500 MPa までの圧力で加圧成形する。これにより、複合磁性粒子 40 が圧縮されて成形体を得られる。加圧成形する雰囲気は、大気中でも良いが、不活性ガス雰囲気または減圧雰囲気とすることが好ましい。この場合、大気中の酸素によって複合磁性粒子 40 が酸化されるのを抑制できる。

【0038】

この際、有機物 50 は、隣り合う複合磁性粒子 40 間に位置して、複数の複合磁性粒子 40 の各々に設けられた上層被膜 30 同士が強く擦れ合うことを防止する。このため、加圧成形時に上層被膜 30 が破壊されるということがない。

【0039】

次に、加圧成形によって得られた成形体に、500℃以上 900℃以下の温度で熱処理を行なう。これにより、成形体の内部に存在する歪みや転位を取り除くことができる。この熱処理時、金属磁性粒子 10 と上層被膜 30 との間に形成された下層被膜 20 の働きによって、上層被膜 30 や有機物 50 に含まれる酸素および炭素が、金属磁性粒子 10 に拡散することを防止できる。この点について、下層被膜 20 が、鉄と比較して、酸素または炭素に対する親和性が大きい非鉄金属によって形成されている場合と、酸素または炭素の拡散係数が小さい非鉄金属から形成されている場合とに分けて説明を行なう。

【0040】

図2は、下層被膜が、鉄と比較して酸素または炭素に対する親和性が大きい非鉄金属によって形成されている場合において、図1中の2点鎖線IIで囲まれた範囲を拡大して示した模式図である。

【0041】

図2を参照して、図中では、下層被膜20がアルミニウムから形成されており、上層被膜30がリン酸化合物から形成されている場合を想定している。この場合、成形体に対する熱処理時に、上層被膜30および有機物50に含まれる酸素と、有機物50に含まれる炭素とが、下層被膜20に向かい、さらに金属磁性粒子10内に拡散しようとする。しかし、下層被膜20は、鉄と比較して酸素および炭素に対する親和力が大きいアルミニウムから形成されている。このため、下層被膜20において、アルミニウムと酸素および炭素との反応が促進し、その反応生成物である Al_2O_3 および Al_4C_3 が次々に生成される。これによって、酸素および炭素が金属磁性粒子10内へ浸入することを防止できる。

【0042】

また、アルミニウム、クロムおよびシリコンの酸化物は、金属単体である場合と比較して、電気抵抗が上昇する。このため、熱処理後においては、上層被膜30に加えて下層被膜20も、金属磁性粒子10間の絶縁層として機能させることができる。

【0043】

図3は、下層被膜が、鉄と比較して酸素または炭素の拡散係数が小さい非鉄金属から形成されている場合において、図1中の2点鎖線IIで囲まれた範囲を拡大して示した模式図である。

【0044】

図3を参照して、図中では、下層被膜20および上層被膜30が、それぞれニッケルおよびリン酸化合物から形成されている場合を想定している。この場合、下層被膜20は、鉄と比較して酸素または炭素の拡散係数が小さいニッケルから形成されている。このため、酸素および炭素の拡散速度は、下層被膜20内において遅くなり、酸素および炭素が金属磁性粒子10内へ浸入することを抑制できる。

【0045】

なお、便宜上、下層被膜20の機能を図2および図3を用いて別々に説明したが、下層被膜20が、鉄と比較して、炭素または酸素に対する親和性が大きく、かつ、炭素または酸素の拡散係数が小さい非鉄金属から形成されている場合、下層被膜20は、図2および図3を用いて説明した両方の機能を発揮する。これにより、酸素および炭素が金属磁性粒子10内へ浸入することをより確実に防止できる。

【0046】

また、下層被膜20を形成するアルミニウム、クロム、シリコン、チタン、バナジウムおよびニッケルなどの非鉄金属は、金属磁性粒子10内の鉄と反応しても、金属磁性粒子10の軟磁性を悪化させない。図4は、各種の金属が固溶した鉄の結晶磁気異方性と、固溶した金属の含有量との関係を示すグラフである。図4を参照して、アルミニウム等の含有量が増加するに従って結晶磁気異方性が低下している。このことから、下層被膜20を形成する非鉄金属と鉄とが反応して金属磁性粒子10が合金化されたとしても、金属磁性粒子10の軟磁性が悪化しないことが分かる。

【0047】

熱処理後、成形体に押出し加工や切削加工など適当な加工を施すことによって、図1中に示す圧粉磁心が完成する。

【0048】

このように構成された軟磁性材料およびその軟磁性材料を用いて作製された圧粉磁心によれば、500℃以上という高温の熱処理を実施しているにもかかわらず、金属磁性粒子10内への酸素および炭素の拡散を抑制することができる。このため、上層被膜30に含まれる酸素および炭素の濃度が急激に低下するということがなく、上層被膜30の絶縁性を維持することができる。これにより、上層被膜30によって金属磁性粒子10間の絶縁性が確保され、圧粉磁心の渦電流損を低減させることができる。

【0049】

また、高温の熱処理によって、圧粉磁心内の歪みを十分に低減させることができる。さらに、金属磁性粒子10内への酸素および炭素の拡散が抑制されているため、金属磁性粒子10の不純物濃度が増大するというものもない。このため、圧粉磁心のヒステリシス損を十分に低減させることができる。以上の理由から、広範囲に渡る周波数領域において、低い鉄損値が得られる圧粉磁心を実現することができる。

【実施例】

【0050】

以下に説明する実施例によって、本発明における軟磁性材料の評価を行なった。

【0051】

まず、市販されているヘガネス社製のアトマイズ純鉄粉（商品名「ABC100.30」、純度99.8%以上）を金属磁性粒子10として準備した。次に、真空蒸着法やメッキ法によって、その金属磁性粒子10に平均厚みが100nmの下層被膜20を形成し、さらに、ゾルゲル法やボンデ処理法によって、平均厚みが100nmの上層被膜30を形成して、複合磁性粒子40としての粉末を完成させた。この際、下層被膜20として、アルミニウム、クロム、ニッケルおよびシリコンを用い、上層被膜30として、Siガラス（Si-O化合物）を用いた。また、比較のため、下層被膜20を設けず、上層被膜30のみを設けた粉末も準備した。

【0052】

次に、この粉末に、有機物50としてのPPS（poly phenylene sulfide）樹脂を0.1質量%の割合で添加し、得られた混合粉末を面圧1275MPa（=13ton/cm²）の圧力で加圧成形することによって成形体を形成した。その後、窒素雰囲気中において、成形体を300℃から900℃までの範囲の異なる温度条件下で1時間、熱処理した。以上の工程により、下層被膜の種類が異なる、複数の圧粉磁心材料を作製した。

【0053】

次に、作製した圧粉磁心材料の周囲にコイル（1次巻き数が300回、2次巻き数が20回）を均等に巻き、圧粉磁心材料の磁気的特性の評価を行なった。評価には、理研電子製のBHトレーサ（ACBH-100K型）を用い、励起磁束密度を10kG（キロガウス）とし、測定周波数を1000Hzとした。測定により得られた各圧粉磁心材料のヒステリシス損係数Kh、渦電流損係数Keおよび鉄損値W_{10/1000}を表3に示す。

【0054】

なお、鉄損値Wは、ヒステリシス損と渦電流損との和によって表され、ヒステリシス損係数Kh、渦電流損係数Keおよび周波数fを用いて次式により求まる。

【0055】

$$W = K_h \times f + K_e \times f^2$$

保磁力H_cの小さな軟磁性が良好なものほど、ヒステリシス損係数Khが小さくなる。また、粒子間の絶縁性が良好であり、圧粉磁心全体としての抵抗が高いほど、渦電流損係数Keが小さくなる。つまり、低保磁力、高抵抗にするほど、ヒステリシス損係数Khおよび渦電流損係数Keが小さくなり、ヒステリシス損および渦電流損がそれぞれ小さくして、結果として鉄損値を小さくすることができる。一般的には、圧粉磁心の熱処理温度を高めるほど、歪み低減量が多くなるため、保磁力H_cおよびヒステリシス損係数Khを低減させることができる。但し、高温での熱処理により絶縁被膜が劣化し、粒子間の絶縁が十分でなくなると、いくつかの磁性粒子が表皮厚さに対してサイズの大きな1つの粒子として振舞う状態となる。この場合、表皮効果により発生する表層電流を無視することができなくなり、ヒステリシス損および渦電流損のいずれについても急激に増加する。このような状態における鉄損値から上式を用いてヒステリシス損係数Khおよび渦電流損係数Keを導出した場合、いずれの値も大きく増大してしまうが、本実施例では、後述する表中の上限温度を超えた温度で熱処理した場合に相当する。

【0056】

【表 3】

上層被膜 下層被膜 熱処理温度	Si ガラス/平均厚み 100nm															なし		
	Al/平均厚み 100nm			Gr/平均厚み 100nm			Ni/平均厚み 100nm			Si/平均厚み 100nm			100nm			なし		
	Kh	Ke	W _{10/1000}	Kh	Ke	W _{10/1000}	Kh	Ke	W _{10/1000}	Kh	Ke	W _{10/1000}	Kh	Ke	W _{10/1000}	Kh	Ke	W _{10/1000}
300°C	142	0.036	178	150	0.039	189	149	0.034	183	144	0.030	174	142	0.033	175			
400°C	130	0.034	164	133	0.040	173	129	0.036	165	131	0.042	173	131	0.046	177			
500°C	102	0.045	147	106	0.055	161	101	0.041	142	93	0.066	159	106	0.092	198			
600°C	71	0.050	121	80	0.081	161	73	0.052	125	77	0.097	174	89	0.183	272			
700°C	77	0.163	240	88	0.226	314	68	0.069	137	103	0.356	459	104	0.556	660			
800°C	95	0.254	349	120	0.369	489	71	0.088	159	169	0.854	1023	136	1.842	1978			
900°C	133	0.460	593	169	0.690	859	79	0.142	221	229	1.511	1740		測定不能				

単位: Kh[mWs/kg]、Ke[mWs²/kg]、W_{10/1000}[W/kg]

【0057】

表 3 を参照して分かるように、下層被膜 20 を設けなかった圧粉磁心材料では、熱処理温度を 400℃ 以上にすると渦電流損係数が増加したのに対して、アルミニウム、クロム

出証特 2005-3028478

およびニッケルを下層被膜 20 として設けた圧粉磁心材料では、渦電流損係数が増加に転じる上限温度が 600℃となり、シリコンを下層被膜 20 として設けた圧粉磁心材料では、その上限温度が 500℃となった。これにより、500℃以上での熱処理が可能となり、結果として、下層被膜 20 を設けた場合、その上限温度で最も低い鉄損値を得ることができた。得られた鉄損値は、下層被膜 20 を設けなかった場合における最も低い鉄損値 175 W/kg と比較して、小さい値となった。

【0058】

続いて、下層被膜 20 の平均厚みを 500 nm および 1000 nm として、上述の条件と同様の条件で圧粉磁心材料を作製した。これらの圧粉磁心材料についても、磁気的特性の評価を行なった。得られた各圧粉磁心材料のヒステリシス損係数 K_h 、渦電流損係数 K_e および鉄損値 $W_{10/1000}$ を表 4 および表 5 に示す。表 4 に示す結果が、下層被膜 20 の平均厚みを 500 nm とした場合の値であり、表 5 に示す結果が、下層被膜 20 の平均厚みを 1000 nm とした場合の値である。

【0059】

【表 4】

上層被膜 下層被膜 熱処理温度	Si ガラス/平均厚み 100nm											
	Al/平均厚み 500nm			Cr/平均厚み 500nm			Ni/平均厚み 500nm			Si/平均厚み 500nm		
	Kh	Ke	W ₁₀ /1000	Kh	Ke	W ₁₀ /1000	Kh	Ke	W ₁₀ /1000	Kh	Ke	W ₁₀ /1000
300°C	148	0.042	190	150	0.038	188	153	0.030	183	151	0.029	180
400°C	144	0.044	188	139	0.037	176	135	0.031	166	136	0.033	169
500°C	111	0.041	152	108	0.036	144	108	0.036	144	98	0.036	134
600°C	80	0.052	132	91	0.052	143	79	0.044	123	69	0.052	121
700°C	65	0.077	142	73	0.071	144	73	0.066	139	86	0.089	175
800°C	88	0.228	316	85	0.187	272	69	0.079	148	110	0.356	466
900°C	169	0.662	831	137	0.594	731	74	0.120	194	167	0.987	1154

単位: Kh[mWs/kg], Ke[mWs²/kg], W₁₀/1000[W/kg]

【0060】

【表 5】

上層被膜 下層被膜 熱処理温度	Si ガラス/平均厚み 100nm											
	Al/平均厚み 1000nm			Cr/平均厚み 1000nm			Ni/平均厚み 1000nm			Si/平均厚み 1000nm		
	Kh	Ke	W _{10/1000}	Kh	Ke	W _{10/1000}	Kh	Ke	W _{10/1000}	Kh	Ke	W _{10/1000}
300℃	165	0.052	217	170	0.035	205	168	0.031	199	158	0.025	183
400℃	150	0.055	205	156	0.034	190	153	0.033	186	152	0.028	180
500℃	122	0.056	178	123	0.031	154	129	0.035	164	113	0.030	143
600℃	88	0.049	137	92	0.044	136	100	0.039	139	71	0.042	113
700℃	73	0.062	135	76	0.052	128	82	0.044	126	80	0.089	169
800℃	84	0.099	183	68	0.061	129	73	0.053	126	106	0.166	272
900℃	106	0.235	341	70	0.097	167	70	0.089	159	195	0.558	753

単位: Kh [mWs/kg], Ke [mWs²/kg], W_{10/1000} [W/kg]

【0061】

表 4 を参照して、下層被膜 20 を設けた全ての圧粉磁心材料において、渦電流損係数が増加に転じる上限温度が 600℃ となった。表 5 を参照して、アルミニウムおよびクロムを下層被膜 20 として設けた圧粉磁心材料では、上限温度が 700℃ となり、ニッケルを下層被膜 20 として設けた圧粉磁心材料では、上限温度が 800℃ となり、シリコンを下層被膜 20 として設けた圧粉磁心材料では、上限温度が 600℃ となった。下層被膜 20 の平均厚みを大きくすることによって、鉄損値 $W_{10/1000}$ を 110 W/kg から 120 W/kg の水準まで低減させることができた。

【0062】

今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて特許請求の範囲に



よって示され、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

【図面の簡単な説明】

【0063】

【図1】この発明の実施の形態における軟磁性材料を用いて作製された圧粉磁心の断面を示す模式図である。

【図2】下層被膜が、鉄と比較して酸素または炭素に対する親和性が大きい非鉄金属によって形成されている場合において、図1中の2点鎖線I Iで囲まれた範囲を拡大して示した模式図である。

【図3】下層被膜が、鉄と比較して酸素または炭素の拡散係数が小さい非鉄金属から形成されている場合において、図1中の2点鎖線I Iで囲まれた範囲を拡大して示した模式図である。

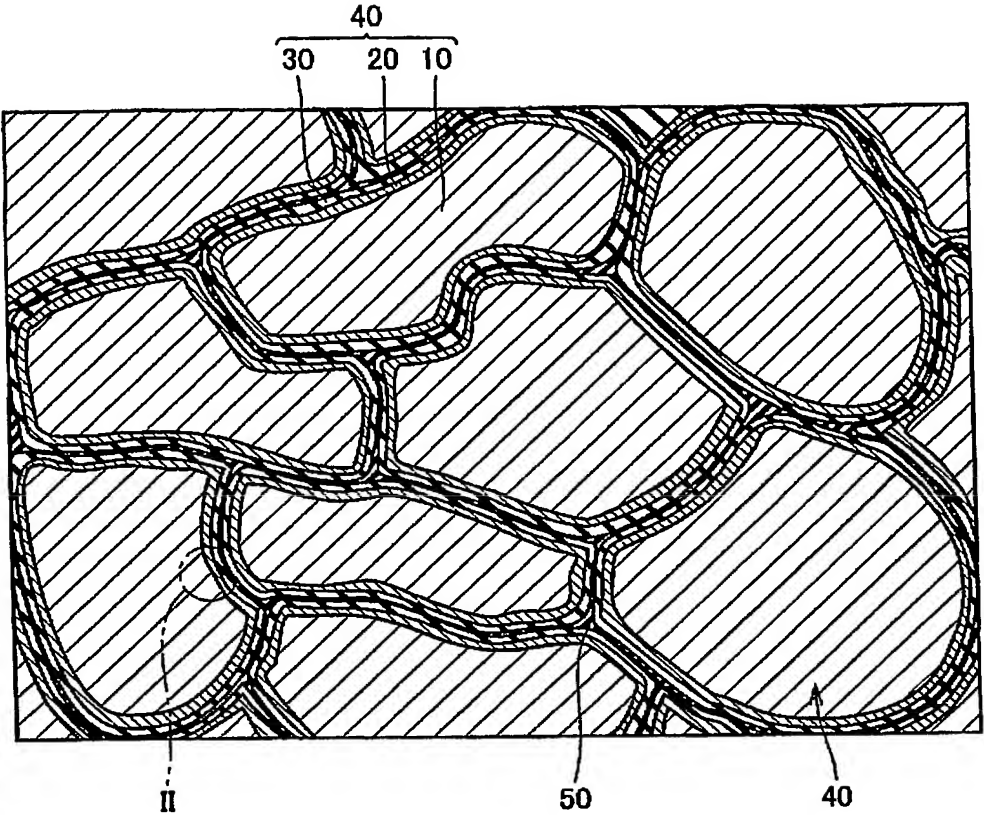
【図4】各種の金属が固溶した鉄の結晶磁気異方性と、固溶した金属の含有量との関係を示すグラフである。

【符号の説明】

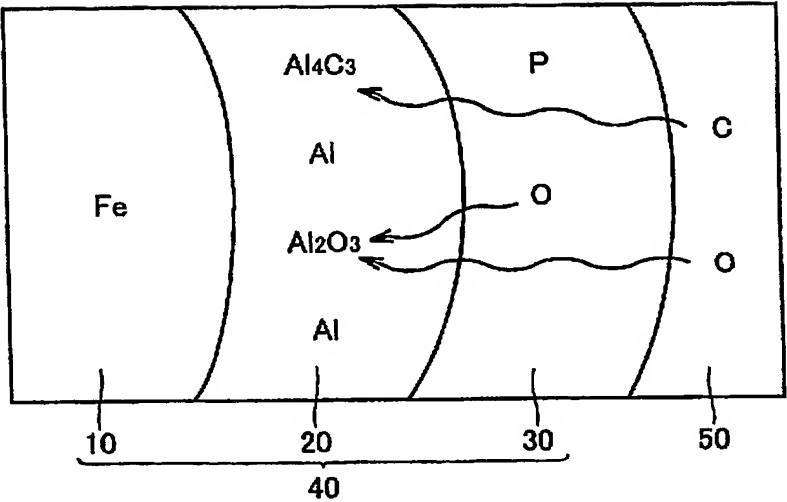
【0064】

10 金属磁性粒子、20 下層被膜、30 上層被膜、40 複合磁性粒子、50 有機物。

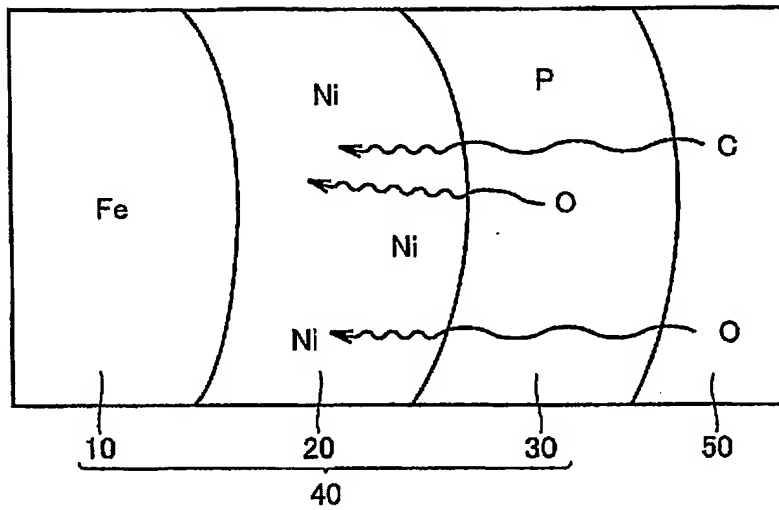
【書類名】 図面
【図 1】



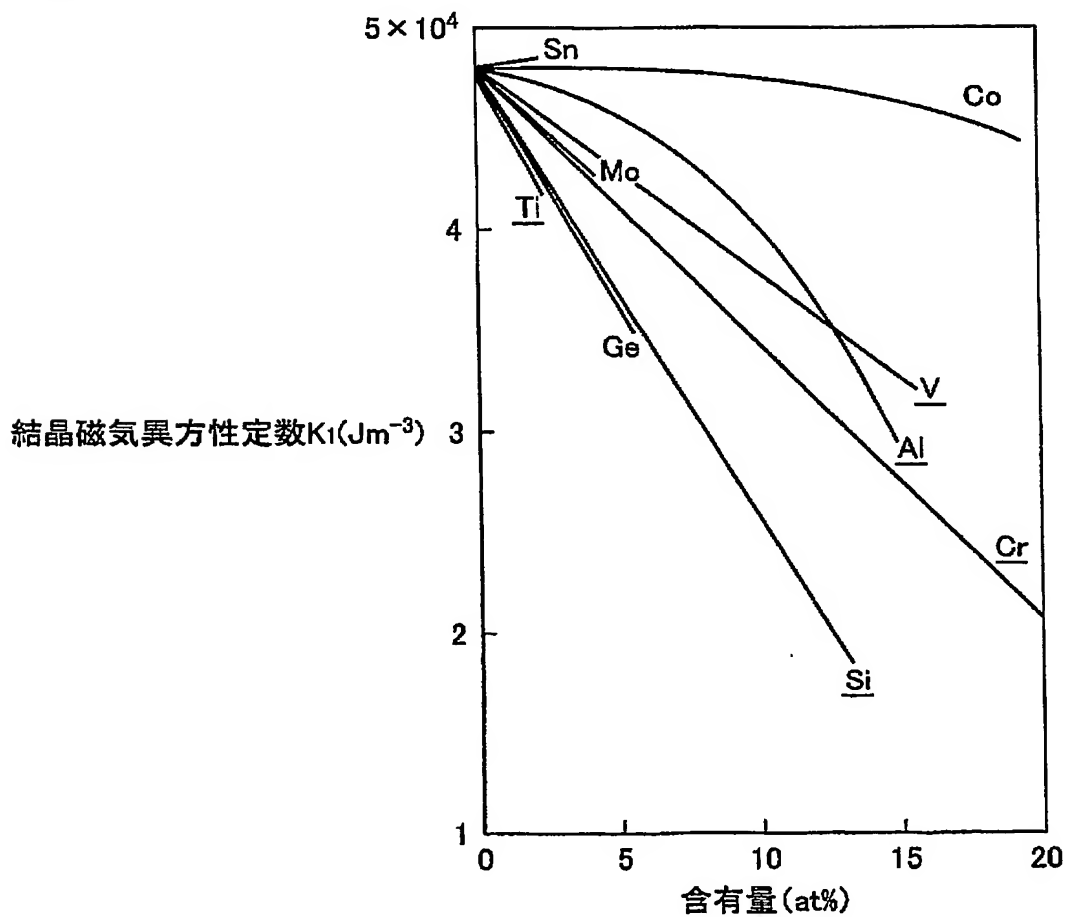
【図 2】



【図 3】



【図 4】



**【書類名】 要約書****【要約】**

【課題】 所望の磁気的特性が得られる軟磁性材料ならびに圧粉磁心およびその製造方法を提供する。

【解決手段】 軟磁性材料は、複数の複合磁性粒子 4 0 を備える。複数の複合磁性粒子 4 0 の各々は、鉄を含む金属磁性粒子 1 0 と、金属磁性粒子 1 0 の表面を取り囲み、非鉄金属を含む下層被膜 2 0 と、下層被膜 2 0 の表面を取り囲み、酸素および炭素の少なくともいずれか一方を含む絶縁性の上層被膜 3 0 とを有する。非鉄金属の、上層被膜 3 0 に含まれる酸素および炭素の少なくともいずれか一方に対する親和力は、鉄のその親和力よりも大きい。

【選択図】 図 1



特願 2 0 0 4 - 0 5 1 2 3 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 2 1 3 0]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 9 日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府大阪市中央区北浜四丁目 5 番 3 3 号
氏 名	住友電気工業株式会社

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/002788

International filing date: 22 February 2005 (22.02.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-051234
Filing date: 26 February 2004 (26.02.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 14 April 2005 (14.04.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse